

(11)特許出願公表番号
特表2000-510531
(P2000-510531A)

(43)公表日 平成12年8月15日(2000.8.15)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード* (参考)
C 2 5 B 1/02		C 2 5 B 1/02	
11/04		11/04	Z
15/00	3 0 2	15/00	3 0 2 A
15/02	3 0 2	15/02	3 0 2

審查請求 有 予備審查請求 有 (全 10 頁)

(21) 出願番号	特願平10-544492
(86) (22) 出願日	平成10年3月24日(1998.3.24)
(85) 翻訳文提出日	平成11年9月27日(1999.9.27)
(86) 国際出願番号	PCT/US98/05916
(87) 国際公開番号	WO98/42893
(87) 国際公開日	平成10年10月1日(1998.10.1)
(31) 優先権主張番号	08/823, 987
(32) 優先日	平成9年3月25日(1997.3.25)
(33) 優先権主張国	米国(US)
(81) 指定国	EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), AU, CA, JP, MX, SG

(71)出願人 ホワットマン インコーポレイテッド
アメリカ合衆国 01835 マサチューセツ
ツ, ヘイパリアル, ネック ロード 260

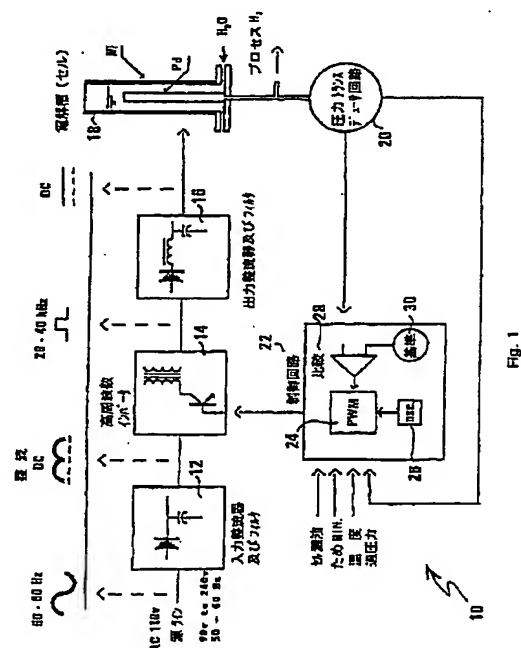
(72)発明者 ツグラブ, ジョージ
アメリカ合衆国 01844 マサチューセツ
ツ, メシュエン, エイボン アベニュー
6 エイ

(74)代理人 弁理士 倉内 基弘 (外1名)

(54) 【発明の名称】 直流水素発生器システムおよび方法

(57) 【要約】

本発明は、直流源を採用して、比例的電流を電解セル（１８）内のカソードに供給する水素ガス発生器のシステムのような超高純度ガス発生器システム（１０）および方法に関する。システム１０は、水素ガス用の金属カソードガス発生器と金属カソード用のＤＣ電流源を備え、出力ＤＣ直線電流が連続的に制御回路（２２）により連続的に変更され、そしてこの制御回路が、セル（１８）からの水素ガス圧またはガス流の変動に基づいてＤＣ源へのパルス幅を変更する。本システムおよび方法においては、直流が電解セル（１８）のバラジウムまたはバラジウム合金カソードに供給され、直流はガス圧またはガス流トランスジューサ（２０）によりセル（１８）内のガス流またはガス圧を監視し出力電圧を制御回路（２２）に供給することによって制御ないし切り替えられる。制御回路（２２）は、高周波数インバータ（１４）のパルスの幅を変調し、その変更、濾波された出力が、比例的、連続的直線電流源としてセル（１８）に供給される。



BEST AVAILABLE COPY

【特許請求の範囲】

(1) ガス発生器セル (槽) 内の電解質への直流の印加により選択されたガスを発生するためのガス発生器システムであって、

(a) 50～60 Hz の AC 電力を受け入れて交流電力から直流電力出力に整流し濾波するための入力整流器およびフィルタと、

(b) DC 直流出力を受け入れて高周波 DC 電力出力を提供する高周波インバータと、

(c) 高周波 DC 電力出力を受け入れてガス発生器のカソードに連続的 DC 電力を供給するための DC 出力および整流器と、

(d) カソードを具備し電解質を有するガス発生器であって、そのセルが連続的出力 DC 電力を受け取って発生器出力から高純度ガスを発生するガス発生器と、

(e) ガス発生器からのガス圧またはガス流を監視して、電圧信号を発生するためのトランスジューサと、

(f) 制御回路と

を備え、該制御回路が、

i) 電圧信号を受信し比較して、電圧制御信号を供給するための電圧比較回路および基準回路と、

ii) 制御信号を受信し、該制御信号に応答して PWM 出力信号を供給するパルス幅変調器 (PWM) と

を備え、この PWM 信号が高周波インバータにフィードバックされて DC 出力および整流器に対する高周波 DC 電力出力のパルス幅を変更し、ガス発生器のカソードに制御されパルス変調された連続 DC 電力を供給することを特徴とするガス発生器システム。

(2) 前記高周波インバータが DC 電力を高周波数の約 20～100 kHz の DC 電力出力に変換する請求項 1 記載のシステム。

(3) 変更されたパルス幅出力が約 10～25 マイクロ秒のパルス時間を有する請求項 1 記載のシステム。

(4) 電解質および高純度ガスの抜き出し用のガス出口を有する DC 電力駆動ガス

発生器から高純度ガスを供給する方法であって、

- (a) AC電力源を提供し、
- (b) AC電力をDC電力出力に整流し、
- (c) DC電力出力をインバーティングして、高周波数のDC電力出力を供給し

(d) ガス圧またはガス流についてガス出口を監視し、このガス圧またはガス流に応答して電圧信号を発生し、

(e) 電圧信号を基準信号に比較して、電圧制御信号を発生し、

(f) パルス幅変調器からのパルス幅変調信号を発生し、電圧制御信号に応答してパルス幅を変更してPWM出力信号を供給し、

(g) このPWM出力信号により高周波数のDC電力出力を変更して、高周波数PWM電力出力を供給し、

(h) PWM電力出力を整流して、平坦な、連続的DC電力出力を供給し、そして

(i) この平坦な、連続的DC電力出力をガス発生器に供給することを特徴とする高純度ガス発生方法。

(5) 約50～60HzのAC電力を供給し、約20～100kHzの高周波数にインバーティングすることによって周波数を増す請求項4記載の高純度ガス発生方法。

(6) DC電力出力をパラジウムカソードを有する超高純度水素ガス発生器に供給することを含む請求項4記載の高純度ガス発生方法。

【発明の詳細な説明】

直流水素発生器システムおよび方法

[発明の背景]

超高純度水素（例えば99.999%純度）は、電気化学的セル内においてパラジウムまたはパラジウム合金カソードを賦活し、水素プロトンを供給することによって発生される（米国特許第3,448,035号を参照されたい）。この種の高純度発生器においては、水が電解され、ハイドロニウムイオンがパラジウムカソード管にて還元され、そしてパラジウム管の内側で水素ガスとなる（99.999%純度）。発生器出力、ガス流または圧力を監視し、AC電源により電解セルに供給されるエネルギーを調節することによって、水素出力圧力、したがって暗黙裡に水素の出力流量が制御される。

水素を発生する他の方法は、イオン交換プロセスにおいて固形重合体電解質を採用するか、イオン交換膜を使用して酸素-水素を発生する（米国特許第5,037,518号および米国特許第5,480,518号を参照されたい）。しかしながら、これらのプロセスは、単一のステップで超高純度の水素を発生しない。何故ならば、水素は水蒸気とともに発生され、これが、普通、シリカゲルまたはパラジウム膜を含む下流の精製器で除去されねばならない。

それゆえ、水素純度および効率が増大された、水素電解セル発生器システムのような、新規で改良された単一ステップの閉鎖ループガス発生器システムおよび方法を提供することが望まれる。

[発明の概要]

本発明は、水素ガス発生器システムのような超高純度ガス発生器システムおよび方法に関するもので、該システムおよび方法は電解セル内のカソードに比例的電流を供給するために直流電源を採用する。

システムは、水素ガス用の金属カソードガス発生器と、金属カソードに対するDC電流源とを備え、出力DCライン電流は、セルからの水素ガス圧または水素ガス流内の変動に基づいてDC電源中へのパルス幅を変更する制御回路

によって連続的に変更される。

本発明のシステムおよび方法においては、電解セルのパラジウムまたはパラジウム合金カソードに直流が供給され、そしてこの直流が、圧力または流れトランスジューサによりセル内のガス流または圧力を監視し、出力電圧を制御回路に供給することによって制御ないし切り替えられる。制御回路は、高周波インバータのパルス幅を変調し、その変調され濾波された出力が連続直線電流源としてセルに供給される。

本発明は、下記の諸要素を含むシステムより成る。すなわち、

(a) 高純度ガス、例えば水素発生用水分解電解セル。このセルは、直流電力が供給されるパラジウムまたは合金のようなガス発生用カソードを備え、水素のような超高純度ガスを回収するためのアウトレットを有する。

(b) セルの水素ガス圧力および流れを監視し、比例的電圧または流量出力を供給するためのガス圧力またはガス流トランスジューサ手段。

(c) AC電力を供給するためのAC電源。

(d) AC電源のAC電流をDC電流に整流し、濾波するためのAC入力整流およびフィルタ手段。

(e) AC入力整流およびフィルタ手段からのDC電流を所定の高周波出力、例えば40～100KHzに変換するための高周波インバータ手段。

(f) 選択された連続DC電流を前記セルのカソードに供給するためのDC出力整流および手段。

(g) パルス変調器を含む制御回路手段。制御回路手段は、前記トランスジューサ手段から前記電圧出力を受け取り、高周波インバータに送られる電気パルス信号の幅を変えることによって前記トランスジューサ電圧出力に応答して前記セルのカソードへの前記所与のDC電流を制御し、それによりガス流量または圧力に応答してセルのカソードへの直流電流を効率的に制御する。

システムおよび本方法は、改善された経済的な電解セル発生器を提供する。何故ならば、システム内のセルに供給される所与のDC電力曲線は、1/4"直径でなく例えば1/8"のより小型のカソード管の使用を可能とし、同じセル容量においてより効果的なセル表面積を提供し、高価パラジウム金属の少量の使用する

からである。

閉鎖ループC連続システムおよび方法は、電解セル内における兆候純度水素の製造の特定の具体例と関連して説明したが、本システムおよび方法は、固形重合体電解質発生器およびその他の電氣的に発生されるガス発生器のような他の水素発生器の製造と関連して使用できよう。

[図面の簡単な説明]

図1は本発明のシステムの例示的ブロック図である。

図2はアンペア/目盛対時間ミリ秒/目盛で表した電気波形のグラフ表示で、本発明(A)に対する従来のAC電流の出力(BおよびC)の比較を示す図である。

[具体例の説明]

本発明のシステム10は、図1に示してある。システム10は、電源ラインからの50~60Hz 90v~240v AC電源を、40~100kHz高周波インバータ14への整流DC出力に変換するためAC入力整流およびフィルタ装置12を含み、そして該インバータは、整流された直流出力を、パルス幅変調(PWM)出力レベルでDC出力整流器およびフィルタ16に対してユーザ回路により必要とされる出力レベルに減ずる。ここで連続直流電流が電解セル18に供給される。セル18は、金属ニッケルハウジングを有し、複数のパラジウムカソード管を有し、電解質が供給され、非常に高純度の水素ガスを提供する。システムは、圧力トランスジューサ20を備えており、セル18の水素ガス圧出力を監視し、比例的出力信号例えば電圧を高周波インバータ14への電氣的信号出力をもつ制御回路22に供給する。

制御回路22は、その信号出力をインバータ14に供給してループを閉鎖する。制御回路22は、パルス幅変調器24(PWM)、発振器26、電圧コンパレータ28および基準電圧30を含む。制御回路22は、セル18への選択された高周波インバータDC出力を調整し、インバータ14の出力からの電気ループを閉じる。

制御回路22は、内部的に所与の周波数、例えば40~100kHzの信号を発生し、所望のDC出力を得るためPWMを使用する。インバータ14の平方駆動

出力のオン時は、トランスジューサ20に対するガス圧力またはガス流の関数としてのガスプロセス出力電圧により制御される。制御回路22に対する入力電圧（ガス流、圧力）が増すにつれ、制御回路22への入力電圧の若干の上昇は、制御回路に信号し、制御回路22の出力でより狭いパルスインバータ14に供給し、逆に、トランスジューサ20からの入力電圧（ガス流、圧力）が減ずるにつれ、より幅の広いパルスがインバータ14に供給され、セル18に対するDC出力電流を変更する。一般的に、パルスの継続時間は、約10～25マイクロ秒（ μs ）の範囲にある。システムはまた、任意的に、セルの漏洩、セルの水使用だめ、セルの温度およびセルの過剰圧力のようなセル18のその他の補助的機能をいずれかの電力で監視し、制御してもよいことを示している。

図2は、水素カソードセル発生器に対して、従来一般に使用される「位相角」（曲線C）または「振幅」調節整流DC（曲線B）電力コントローラに包含される、アンペア／目盛対時間、ミリ秒、での電流の変化間の比較を示す。オン電流の間隔は無電流の間隔と交番し、オフ／オンの比は、2程度とし得る。この従来の動作は、高実効電流値がセルに供給されることを要する結果となる。所与の水素ガス流量に対して、この電流値は、電流線が実質的に連続的である本発明の直流電源システム（図2、A参照）からの電流値の2倍である。従来技術の方法およびシステム（例えば図2、BおよびC）は、より高いセル温度をもたらし、カソードの酸化反応およびセルへ応力がかかる期間が大きい。

流量の観点から、カソード電解セルを有する連続直流電流サージ駆動システムは、カソードパラジウム管に電気機械的応力を加えることなく水素ガス流量を倍化し、より低い運転セル温度を可能とし、逆カソード反応が起こるときの時間間隔の完全な除去を可能とする。

【図1】

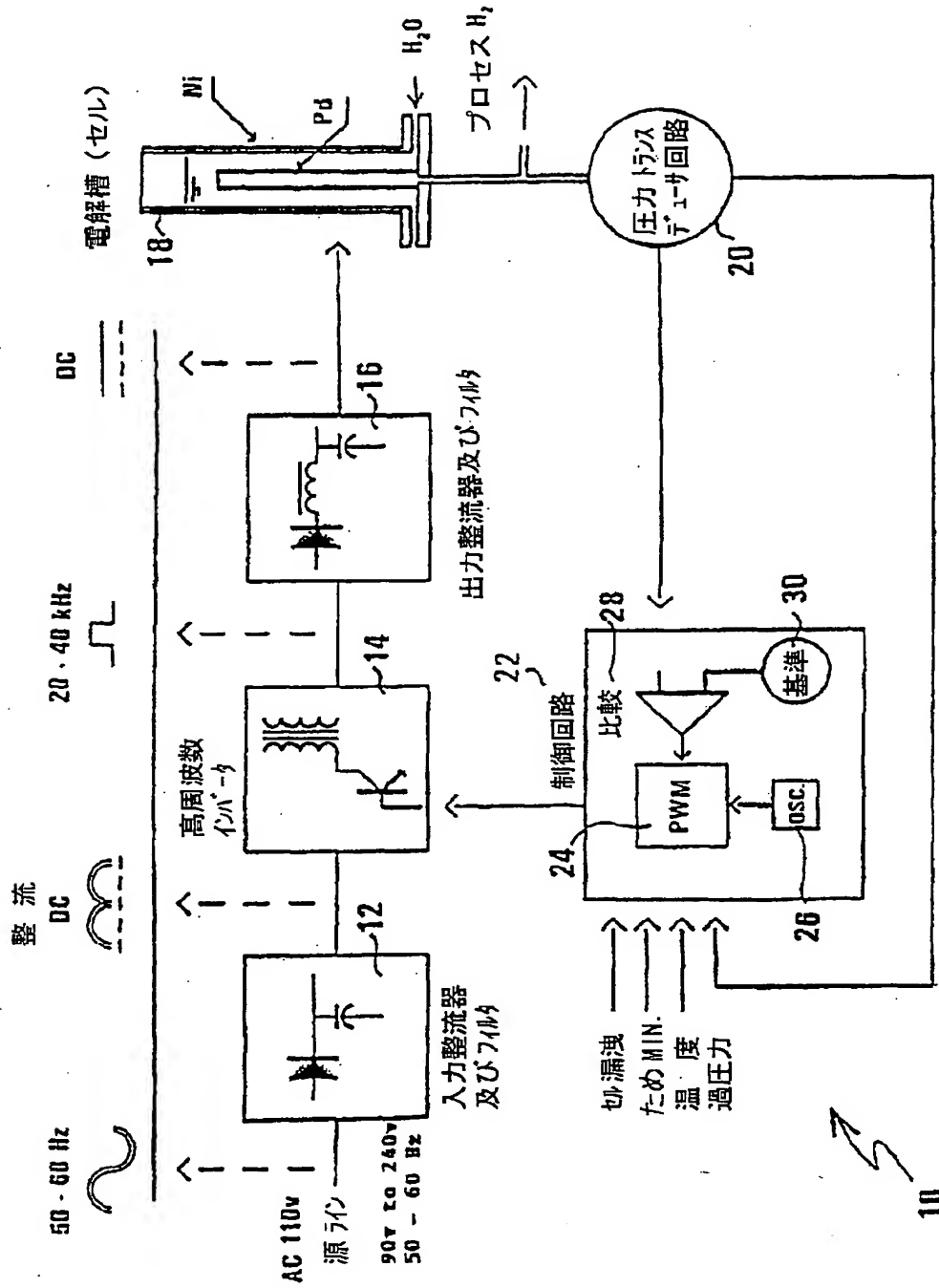


Fig. 1

【図2】

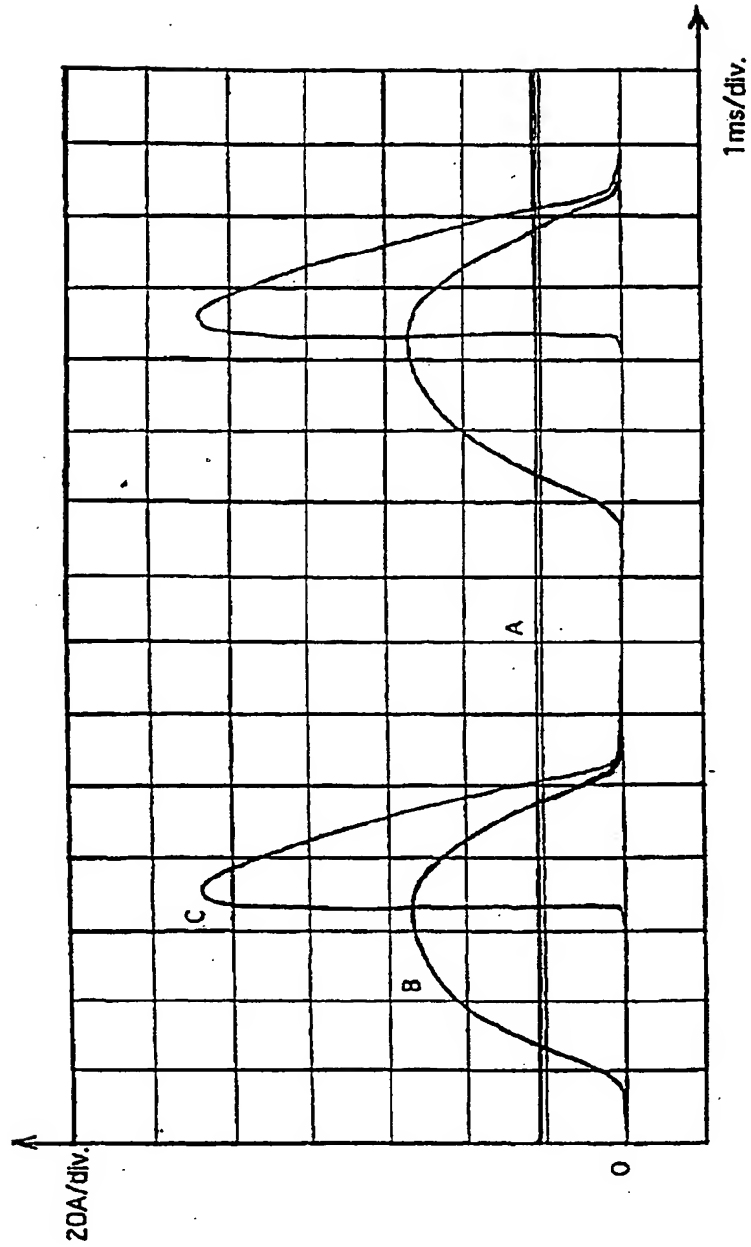


Fig. 2

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/US98/05916

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC(6) : C25B 1/02, 15/02, 15/00, 11/04

US CL : 205/335, 337, 637, 638, 639; 204/228, 229, 230, 291

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

U.S. : 205/335, 337, 637, 638, 639; 204/228, 229, 230, 291

Documentation searched other than minimum documentation in the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 4,822,469 A (SHIMOMURA et al) 18 April 1989 (18-04-89), see abstract and column 5, lines 51-62.	1, 3-9, 11
--		
Y		2, 10
X	US 5,037,518 A (YOUNG et al) 06 August 1991 (06-08-91), see abstract; column 6, lines 15-24; column 8, lines 1-36; column 10, lines 18-34.	1, 3-9, 11
--		
Y		2, 10
Y	US 4,078,985 A (TAKEUCHI) 14 March 1978 (14-03-78), see abstract and column 1, lines 5-16 and 33-49.	2, 10

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	T	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
A document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	X	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
E earlier document published on or after the international filing date	Y	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
L document which may throw doubt on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	A	document member of the same patent family
O document referring to oral disclosure, use, exhibition or other means		
P document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		

Date of the actual completion of the international search

04 MAY 1998

Date of mailing of the international search report

23 JUN 1998

Name and mailing address of the ISA/US
Commissioner of Patents and Trademarks
Box PCT
Washington, D.C. 20231

Facsimile No. (703) 305-3230

Authorized officer

BRUCE BELL

Telephone No. (703) 308-0661

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.